術論

文

Alloy282の再結晶挙動に及ぼす粗大 y [']相の影響

Effect of coarse γ ' phase on recrystallization behavior in Alloy282



y / y'型Ni基超合金 Alloy282 はy母相中にy'相が整合析出することで、優れた高温強度を示す。しかし、本合金はy' 相固溶温度以下では熱間加工性が低いことから、特に大型部材を製造する際に鍛造が困難となる。本研究では、y'相固溶 温度以下でも y / y'型Ni基超合金の鍛造が可能なプロセスの開発を目的として、y'相の分布が異なる Alloy282 を用いて円 柱圧縮試験と組織観察を実施し、その動的再結晶挙動を確認した。y'相のサイズが大きい場合、粗大な y'粒子間の y 単相 領域で局所的に変形が生じ、それに伴い同温度での動的再結晶はy'相が微細な材料に比べて進行し、y'相固溶温度以下で も優れた熱間加工性を示した。一般に、第二相粒子のサイズが小さい場合は再結晶の進行を阻害する。すなわち、y'相の粗 大化により、粒内のy相領域での変形が可能になったことに加え、微細な y'相による動的再結晶の進行を阻害する作用が低下 したため、Alloy282 の熱間鍛造工程におけるプロセスウィンドウが拡大したと考えられる。

Alloy282, that is the γ / γ' type Ni-based super alloys, has excellent high-temperature strength due to the precipitation of coherent γ' phase. However, manufacturing large forged parts of Alloy282 is especially difficult due to the poor hot workability below γ' solvus temperature. In this study, in order to develop a forging process below γ' solvus temperature, the effect of γ' distribution on dynamic recrystallization of Alloy282 behavior was confirmed by compression tests and microstructure observation. In coarse γ' material, local deformations occurred at γ single-phase region between coarse γ' particles, as a result dynamic recrystallization more occurred than fine γ' material at same temperature. Further, coarse γ' material showed excellent hot workability at below γ' solvus temperature. In general, recrystallization is inhibited by fine second-phase particles. Hence, the coarsening of the γ' phase is not only enabled deformation in the γ single-phase region within the grains, but also is believed to have reduced the inhibitory effect on the progression of dynamic recrystallization due to the fine γ' phase. This study result suggested the possibility of expanding the process window in the hot forging process of γ / γ' type Ni-based super alloys.

^{*:} イノベーションマネジメント本部 マテリアル技術研究所 /Material Technology Laboratory, Innovation Management Headquarters

^{**:}日本製鋼所 M&E (株) 素形材製品部 / Materials Engineering Department, Japan Steel Works M&E, Inc.

1. 緒 言

Ni 基超合金は Fe 基合金に比べて高温強度や耐食性が 優れることから、航空機部材や化学プラント、発電用プラント などで用いられている。中でも Alloy282 や Rene41 に代表さ れる y / y'型 Ni 基超合金は y相中に y'相が整合析出するこ とで優れた高温強度を発現するため、高温域で使用される 部材に適している。一方で、同合金は y'相の固溶温度以下 では微細な y'相の析出に伴い、変形抵抗が上昇し、延性が 低下するため、熱間鍛造が困難になる。そのため、一般に、 y / y'型 Ni 基超合金の鍛造はy'相の固溶温度以上で実施 されることが多い。しかし、鍛造温度が高い場合には結晶粒 が粗大化し、機械的特性⁽¹⁾や超音波透過性が悪化する。こ の問題は、加熱時間・鍛造時間が長く粒成長が生じ易い大 型鍛造品において特に顕在化する。したがって、y / y'型 Ni 基超合金において優れた熱間加工性と結晶粒微細化を両立 する鍛造プロセスの開発が求められている。

これまでに、y'相固溶温度以下での熱間加工性を改善す る鍛造プロセスが幾つか提案されている。例えば、今野らは y'相固溶温度以下、かつ再結晶が迅速に進む温度域で鍛 造することにより、y'相を y相中に非整合析出させて熱間加 工性を改善することに成功した^{(2),(3)}。しかし、厚肉の大型 部材の場合には鍛造中の材料温度が一定ではなく付与され る鍛造ひずみも均一ではないため、今野らのプロセスをそのま ま適用するのは難しい。

一方で、より簡便な手法として、y'相固溶温度以下での加 熱保持や徐冷によって y'相を粗大化させ、そのピンニング効 果を用いて粒成長を抑制しながら鍛造するプロセスが提案さ れている^{(4)、(5)}。本手法は熱処理のみで実施可能であること から厚肉の大型部材へ適用出来る可能性がある。しかし、 粗大な y'相が存在する状態での熱間加工性に関する報告は 非常に少ない。

本研究では、y / y'型 Ni 基超合金において、熱間加工性 と結晶粒微細化を両立可能な鍛造プロセスを開発することを 目的とし、代表的な y / y'型 Ni 基超合金である Alloy282 を 対象に、y'相固溶温度以下で粗大な y'相が熱間延性と再結 晶挙動に及ぼす影響を円柱圧縮試験および組織観察によっ て明らかにした。

2. 実験方法

2.1 供試材料

真空誘導溶解(Vacuum Induction Melting: VIM)で溶 製した 50 kg 鋳塊を平均鍛造比 11.2S で W100 mm × T35 mm × L 形状に鍛造した板材を供試材とした。表1に供試 材である Alloy282 (UNS N07208)の化学組成を示す。 Ti は UNS 規格の下限値を下回っているが、熱間延性と 再結晶挙動に及ぼす粗大な y'相の影響を調査する上で問題 無いと判断し、そのまま各種試験に供した。

表1 供試材の化学組成 (mass %)

	Fe	С	Si	Mn	Ni	Cr	Mo	Al	Ti	Co	В
規格 (UNS N07208)	~1.8	0.04~ 0.08	~0.15	~0.53	Bal.	18.5~ 20.5	8.0~ 9.0	1.38~ 1.65	2.25~ 2.75	9.0~ 11.0	~0.006
供試材	< 0.0009	0.06	0.1	0.01	Bal.	20.2	8.5	1.52	2.10	10.03	0.005

2.2 熱処理

図1に熱処理条件を示す。Thermo-Calc⁽⁶⁾ (Ni-data ver.6)を用いた熱力学計算の結果、本供試材組成における y'相固溶温度は1280.8 Kと予想された。そこで、均質化熱 処理を施した供試材に対して、以下の y'相析出・粗大化処 理を実施した。y'相析出・粗大化処理は①1293 K における 溶体化処理、②1233 K における恒温保持、③973 K まで の徐冷(10 K/h)から構成され、それぞれの狙いは下記の 通りである。

- 溶体化処理:粒成長させずに y'相をy母相中に固溶させる
- 恒温保持: y'相固溶温度以下での保持により、少量の y'相を析出させる
- ③ 徐冷:前工程で析出した y'相を粗大化させる

なお、均質化熱処理の冷却過程およびその後の加熱過程 において微細な y'相が析出する。以降、本報では均質化熱 処理後の材料を微細 y'材、y'相析出・粗大化処理後の材 料を粗大 y'材と称す。



2.3 円柱圧縮試験

微細 y[·]材と粗大 y[·]材を用いて円柱圧縮試験を実施した。 図 2 に円柱圧縮試験条件を示す。円柱圧縮試験には熱間 加工再現試験装置 (富士電波工機株式会社製、サーメック マスター Z)を用いた。 ϕ 12 mm × H18 mm の円柱試験片を 973 ~ 1423 K まで 200 K/s の速度で昇温し、5 min 間 均熱化保持してからひずみ速度 $\epsilon = 1 \times 10^2$ /s で 10 % ~ 50 % まで圧下した後、N₂ ガスにて急速冷却した。

2.4 金属組織観察および硬さ試験

熱処理後および円柱圧縮試験後の微細 y'材と粗大 y'材に 対して SEM 観察、EBSD 測定、TEM 観察およびビッカース 硬さ試験を行った。SEM 観察および EBSD 測定は樹脂埋 めした試験片を機械研磨した後に実施した。TEM 観察試 料は試験片からφ 3 mm、厚さ0.1 mmの円板を切り出し、 それを273 Kのブトキシエタノールと5 % 過塩素酸の混合液 中でジェット研磨することで作製した。



図2 円柱圧縮試験条件

3. 実験結果

3.1 熱処理後の金属組織

図3に熱処理後のSEM像を示す。微細 y'材は粒界に フィルム状の炭化物が析出し、粒内に微細な y'相が観察さ れた。これらは均質化熱処理後の冷却中に析出したものと 考えられる。一方、粗大 y'材は粒界が y'相で被覆され、 粒内はオクトデンドライト状⁽⁷⁾の粗大な y'相とそれよりも微細 な y'相が混在していた。



図3 熱処理後の SEM 像:(a) 微細 y'材,(b) 粗大 y'材

3.2 円柱圧縮試験結果

図4に1173 K、圧下率50%における変形抵抗曲線、 図5に圧縮試験後の試験片断面の鏡面観察結果をそれぞ れ示す。変形抵抗曲線は円柱圧縮試験により得られた荷重 と変位のデータを小坂田ら⁽⁸⁾の手法に則して真応力(σ)と相 当塑性ひずみ(ε)の関係に整理した結果である。図5に示す ように、圧縮試験後の粗大 y'材には割れがほとんど確認され なかった。一方、微細 y'材には多数の割れが確認されたこ とから、微細 y'材の変形抵抗曲線は参考扱いである。

図4の変形抵抗曲線において、試験開始直後の σ は微 細 y'材で400 MPa、粗大 y'材で320 MPa 程度であった。 加工初期における σ の増加度合いは粗大 y'材が微細 y'材よ りも大きく、粗大 y'材の σ は $\varepsilon = 0.05$ までに微細 y'材をわ ずかに上回る程度まで増加した。しかし、その後、粗大 y'材の σ は $\varepsilon = 0.33$ 程度までほぼ一定の値(550 MPa)と なり、それ以降は徐々に減少した。一方、微細 y'材の σ は $\varepsilon = 0.30$ 程度までゆるやかに増加し700 MPa 強に 達した後、徐々に減少した。 図6に各試験温度で得られた変形抵抗曲線の最大応力 (σ_{max})と試験温度(T)の関係を示す。なお、50% 圧下後 に割れが生じなかった条件を OPEN マーク(\bigcirc , \diamondsuit)、生じた 条件を SOLID マーク(\bigcirc , \diamondsuit)でプロットしている。いずれの 材料も試験温度の上昇に伴い σ_{max} が低下し、同温度におけ る σ_{max} は粗大 y'材が微細y'材より低かった。また、微細 y' 材は y'相固溶温度以下の 1223 K 以下では割れなく変形す ることができなかったが、粗大 y'材は y'相固溶温度以下でも 割れなく変形可能で、割れが生じた温度は 1023 K 以下と微 細 y'材に比べて 200 K も低温であった。







図5 圧縮試験後の試験片断面の鏡面観察結果 (1173 K, 圧下率50%):(a) 微細 y'材,(b) 粗大 y'材



3.3 円柱圧縮試験後の金属組織

図7に1173 Kで5%~20% ($\varepsilon = 0.05 \sim 0.22$) 圧下 した圧縮試験片の中央部にてEBSD 測定を実施して得られ たIPF (Inverse Pole Figure) map を示す。粗大 y'材は 圧下率の増加に伴い粒界が張り出し、徐々に粒回転してい た(図7 (a)~ (c)黄色矢印部)。そして、圧下率 20% においては粒界近傍に多数の再結晶粒が認められた(図7 (d))。図4の1173 Kにおける変形抵抗曲線において、粗 大 y'材の真応力が微細 y'材より低く、 $\varepsilon = 0.05$ 以降ほぼ一 定となっていることから、これらの再結晶粒は動的再結晶に よって生じたものと推察される。一方、微細 y'材は粒界近 傍にわずかに再結晶粒は認められるものの、その生成量は 粗大 y'材と比べて明らかに少なかった。

図8に図7と同視野におけるKAM (Kernel Average Misorientation) map を示す。粗大 y'材は圧下率の上昇に 伴い、まず粒界近傍のKAM 値が高くなり(図8 (a))、そ の後粒内のKAM 値も増加した(図8 (b) ~ (d))。一方、 圧下率 20 %の微細 y'材は粒界近傍のKAM 値が粒内より も高かったが、その範囲は限定的であり、また粒内のKAM 値は圧下率 5 %の粗大 y'材と同程度の極めて低い値であっ た(図8 (e))。以上の結果から、粗大 y'材は粒界近傍のみ ならず粒内も変形するのに対し、微細 y'材は粒界近傍のみ に変形が集中していることが分かった。

4. 考察

以上の結果より、熱間圧縮試験前にy'相を粗大化すること で、y'相固溶温度以下の熱間加工性が向上し、変形抵抗を 低減できることが分かった。また、y'相を粗大化することで 粒界近傍だけではなく粒内も変形し、かつ、粒界近傍で動 的再結晶が生じ易いことも明らかになった。そこで、y'相の サイズが粒内の変形挙動と動的再結晶挙動に及ぼす影響 を把握するため、圧縮試験後の試験片に対して TEM 観察 を行った。

図9に1173 Kで10% 圧下した圧縮試験片の中央部の TEM 観察結果を示す。本図は各材料のSTEM 像および [100]の電子回折図形である。また、微細 y'材においては規 則反射が認められたことから、規則反射における暗視野像も 示している。粗大 y'材のSTEM 像において、最も暗いコント ラストの部分は粗大な y'相である(図9(a))。粗大な y'相 以外の母相領域における電子回折図形には y'相の規則反射



図 9 1173 K で 10 % 圧下した圧縮試験片中央部の TEM 観察 結果: (a) 粗大 y'材, STEM 像および回折像,(b) 微細 y'材, STEM 像および回折像,(c) 微細 y'材, 規則反射 における暗視野像



図7 1173 K で圧縮試験した試験片中央部の IPF map: (a) 粗大 y'材, 圧下率 5% (ε =0.05), (b) 粗大 y'材, 圧下率 10% (ε =0.11) (c) 粗大 y'材, 圧下率 15% (ε =0.16), (d) 粗大 y'材, 圧下率 20% (ε =0.22), (e) 微細 y'材, 圧下率 20% (ε =0.22)



図8 1173 K で圧縮試験した試験片中央部の KAM map: (a) 粗大 y'材, 圧下率 5 % (ε =0.05), (b) 粗大 y'材, 圧下率 10 % (ε =0.11) (c) 粗大 y'材, 圧下率 15 % (ε =0.16), (d) 粗大 y'材, 圧下率 20 % (ε =0.22), (e) 微細 y'材, 圧下率 20 % (ε =0.22)

はなく、母相は y'相が析出しておらず、y単相であることが確 認された。また、y相中には濃淡が見られ、特に粗大な y'相 近傍の転位密度が明らかに高くなっていた。一方で、微細 y'材では粗大 y'材と比べて転位が均一に分布していた(図 9 (b))。さらに、電子回折図形には y'相の規則反射が認 められ、暗視野像には数 nm 程度の y'相が認められた(図 9 (c))。つまり、粗大 y'材における母相は y相は粗大な y'相 近傍で局所的に変形することができるが、微細 y'材において は母相が y'相の整合析出により強化されているため変形しづ らいと考えられる。

また、図 10に示すように母相の再結晶挙動に及ぼす第二 相粒子の影響は、その y'等価粒子径と y'体積率によって異 なり、以下の3種類に分類される^{(9).(10)}。

- 再結晶の駆動力となるひずみが少ない変形量で母相に 蓄積され、再結晶が促進される。
- 第二相粒子を核生成サイトとして再結晶が進行する粒子 誘起核生成(PSN: Particle Stimulated Nucleation or Recrystallization)が発現する。
- ③第二相粒子によって粒界移動や粒内変形が抑制され、 再結晶が阻害される。

今回の試験において、粗大 y'材は微細y'材よりも動的再 結晶が少ないひずみで生じていた。すなわち、粗大 y'材で は上記の①、微細 y'材では③の影響が強く現れたと考えら れる。

したがって、熱間圧縮試験前に y'相を粗大化することで、 y'相固溶温度以下での熱間加工性が向上し、この理由とし ては、粒界近傍だけではなく粒内においても粗大な y'相周囲 の y相単位領域で変形が可能になったこと、さらに y'相のサ イズが大きいために再結晶の進行が阻害されなくなったことが 挙げられる。



図10 母相の再結晶挙動に及ぼす第二相粒子の体積率および 粒子径の影響

なお、図 10 によると、y'相をさらに粗大化させることができ れば、y'相が粒内での核生成サイトとして機能して PSN が生 じ、さらに鍛造性を改善できる可能性がある。また、粗大 y' 材と微細 y'材では粒内のみならず粒界の析出物の性状も異 なっており、これらの影響は未だに把握できていない。今後 は、これらの粗大 y'相のサイズや粒界析出物の性状が熱間 加工性や再結晶挙動に対してどのような影響を及ぼすかさら に詳細に検討する所存である。

5. 結 言

y / y'型 Ni 基超合金におけるy'相の固溶温度以下で適用 可能な鍛造プロセスを開発することを目的に、熱処理によって y'相のサイズを変えた Alloy282 を用いて熱間加工性と再結 晶挙動を確認し、以下の結論を得た。

- 1) 1173 Kの円柱圧縮試験において、粗大 y'材の真応 力 σ は試験開始直後では微細 y'材よりも低かった が、急速に加工硬化し、相当塑性ひずみ $\varepsilon = 0.05$ に達するまでに微細 y'材の σ を上回った。しかし、 それ以降はほぼ一定の値を示した。一方、微細 y'材は $\varepsilon = 0.30$ 程度までゆるやかに加工硬化した後に 徐々に σ が減少した。
- 2) 最大応力 σ max は粗大 y'材、微細 y'材ともに、圧縮 試験温度の上昇に伴い低下したが、同試験温度にお いては粗大 y'材が微細 y'材よりも低かった。
- 3) 50 % 圧下後に微小な割れが認められた試験温度は微 細 y'材で1223 K 以下、粗大 y'材で1023 K 以下で あり、割れが生じる温度に200 K もの差が生じた。
- 4) 粗大 y'材は粒界近傍、粒内の順に変形が生じ、粒界 近傍で動的再結晶が生じた。一方で、微細 y'材は粒 界近傍のみが変形し粒内はほとんど変形せず、粗大 y' 材に比べて再結晶が進行しなかった。
- 5) 粗大 y'材は粗大な y'相近傍において局所的な変形が 認められたが、微細 y'材には粒内全体に y'相が整合 析出しているため、粒内での局所的な変形は認められ なかった。

以上の結果から、熱間鍛造前に y'相を粗大化させること で、粒界だけではなく粒内も変形可能となり、さらに y'相によ る y相の動的再結晶を阻害する作用が小さくなることが示唆 された。すなわち、本プロセスは y'相の固溶温度以下での y / y'型 Ni 基超合金のプロセスウィンドウ拡大に有用と考えら れる。

参考文献

- (1) 皮籠石紀雄,前村英史,陳強,後藤真宏,森野数博:"Ni 基超合金インコネル 718 の超音波疲労特性に及ぼす結 晶粒径の影響",日本機械学会論文集 A 編, Vol. 74 (2008), pp. 1000-1005
- (2) 今野晋也,佐藤順,鴨志田宏紀,芝山隆史,太田敦夫: "火力プラントの効率向上に寄与する高強度鍛造 Ni 基 合金の合金設計及び革新的製造技術",三菱重工技報, Vol. 52 (2015) No. 2, pp. 30-35
- (3) 太田敦夫,今野晋也,鴨志田宏紀:"Ni基合金軟化材、 これを用いたNi基合金部材、ボイラーチューブ、燃焼 器ライナー、ガスタービン動翼、ガスタービンディスク及 びNi基合金構造物の製造方法",特許第 6382860 号 (2016)
- (4) D.M. Collins, B.D. Conduit, H.J. Stone, M.C.Hardy, G.J. Conduit, and R.J. Mitchell : "Grain growth behaviour during near- γ ' solvus thermal exposures in a polycrystalline nickel-base superalloy" Acta Materialia, Vol. 61 (2013) , pp. 3378-3391
- (5) 西本孝志,岡島琢磨: "サブソルバス鍛造プロセスにおける Ni 基超合金の再結晶挙動",電気製鋼, Vol. 89 (2018), pp. 33-36
- B. Sundman, B. Jansson, and J. -O. Andersson :Calphad, Vol.9 (1985) , pp. 153-190
- (7) 山口義矢, 久澤大夢, 寺田芳弘: "鍛造 Ni 基超合金 Udimet 720Li における析出相形態の定量的評価",日 本金属学会誌, Vol. 82 (2018), pp. 375-383
- (8) K. Osakada, T. Kawasaki, K. Mori, and N.Taniguchi : "A Method of Determining Flow Stress under Forming Conditions", Annals of the CIRP, Vol. 30 (1981), pp. 135-138
- (9) F.J. Humphreys : "The nucleation of recrystallization at second phase particles in deformed aluminium", Acta Metallurgica, Vol. 25 (1977), pp. 1323-1344
- (10) F.J. Humphreys and M. Hatherly : "Recrystallization and Related Annealing Phenomena", p. 259, Pergamon (1995)